

51

Int. Cl. 2:

**C 10 J 3/54**

19 **BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**

C 10 J 3/84

**DEUTSCHES PATENTAMT**



**DE 27 29 764 A 1**

11

# **Offenlegungsschrift 27 29 764**

21

Aktenzeichen:

P 27 29 764.9-24

22

Anmeldetag:

1. 7. 77

43

Offenlegungstag:

4. 1. 79

30

Unionspriorität:

32 33 31

54

Bezeichnung:

Verfahren zur Vergasung von kohlenstoffhaltigem Material

71

Anmelder:

Davy Bamag GmbH, 6308 Butzbach

72

Erfinder:

Anwar, Jamil, Dr., 5023 Weiden; Bögner, Friedrich, Dipl.-Ing. Dr.-Ing.,  
5000 Köln; Sud, Kuldip Kumar, Dipl.-Ing., 5023 Weiden

Prüfungsantrag gem. § 28 b PatG ist gestellt

**DE 27 29 764 A 1**

Davy Powergas GmbH, Köln

Verfahren zur Vergasung von  
kohlenstoffhaltigem Material

Patentansprüche

1. Verfahren zur Vergasung von kohlenstoffhaltigem Material mit Sauerstoff, Luft oder mit  $O_2$  angereicherter Luft und Wasserdampf und/oder  $CO_2$  in einem Wirbelschichtgenerator mit einer über der Wirbelschicht befindlichen Nachvergasungszone bei Temperaturen im Bereich von etwa 800 bis 1200 °C zu einem Wasserstoff, Kohlenmonoxid und kohlenstoffhaltige Ascheteilchen enthaltenden Produktgas, Abscheidung der kohlenstoffhaltigen Ascheteilchen aus dem Produktgas, Verbrennung der kohlenstoffhaltigen Asche mit Sauerstoff unter Bildung eines Kohlendioxid enthaltenden Verbrennungsgases und eines im wesentlichen kohlenstofffreien Rückstandes und Einsatz des Verbrennungsgases als weiteres Vergasungsmittel und Wärmeträger in dem Wirbelschichtgenerator, dadurch gekennzeichnet, daß man die aus dem Produktgas abgeschiedene und die aus dem Wirbelschichtgenerator unmittelbar ausgetragene kohlenstoffhaltige Asche in einer im wesentlichen aus ausgebrannter Asche bestehenden Wirbelschicht bei Temperaturen unterhalb des Ascheschmelzpunktes verbrennt.

809881/0570

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man Wasser, vorzugsweise verunreinigte Wässer aus der Kühlung und Naßreinigung des Produktgases, in die Aschewirbelschicht einspritzt und das wasserdampfhaltige Verbrennungsgas als Vergasungsmittel dem Wirbelschichtgenerator zuführt.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß man Wasserdampf in die Aschewirbelschicht einleitet und nach direkter Überhitzung dem Wirbelschichtgenerator zuführt.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß man Kohlensäure in die Aschewirbelschicht einleitet und nach direkter Aufheizung dem Wirbelschichtgenerator zuführt.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man die Temperatur der Aschewirbelschicht in dem Bereich von etwa 1000 bis 1300 °C hält.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß man von dem Verbrennungsgas auf dem Wege von der Aschewirbelschicht zur Kohlevergasungswirbelschicht suspendierte Ascheteilchen ohne wesentliche Absenkung der Gas-temperatur abtrennt.

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Vergasung von kohlenstoffhaltigem Material mit Sauerstoff oder Luft oder mit Sauerstoff angereicherter Luft und Wasserdampf und/oder  $\text{CO}_2$  in einem Wirbelschichtgenerator mit einer über der Wirbelschicht befindlichen Nachvergasungszone bei Temperaturen im Bereich von etwa 800 bis 1200 °C zu einem Wasserstoff, Kohlenmonoxid und kohlenstoffhaltige Ascheteilchen enthaltenden Produktgas, Abscheidung der Ascheteilchen aus dem Produktgas, Verbrennung der kohlenstoffhaltigen Asche mit Sauerstoff unter Bildung eines Kohlendioxid enthaltenden Verbrennungsgases und eines im wesentlichen kohlenstofffreien Rückstandes und Einsatz des Verbrennungsgases als weiteres Vergasungsmittel und Wärmeträger in dem Wirbelschichtgenerator.

Bei der Kohlevergasung im Wirbelschichtgenerator nach Winkler werden mit dem rohen Produktgas kohlenstoffhaltige Ascheteilchen aus dem Generator ausgetragen, wodurch ein Teil des eingesetzten Kohlenstoffs für die Vergasung verlorengeht. Dieser Verlust ist umso größer, je höher der Aschegehalt der eingesetzten Kohle ist. Da aschereiche Kohlen sich wegen ihres günstigen Preises zur Vergasung besonders eignen, wäre es von

Vorteil, die durch den Ascheaustrag bedingte Minderausnutzung der eingesetzten Kohle zu verringern oder sogar zu beseitigen.

Der Kohlenstoff in den Vergasungsrückständen liegt teilweise in graphitischer Form vor, der zwar verbrennungsfähig ist, gegenüber einer Vergasung sich jedoch verhältnismäßig reaktions-träge verhält,

Es sind die folgenden Verfahren bekannt, um den Kohlenstoffgehalt der Flugasche auszunutzen:

1. Die kohlenstoffhaltige Flugasche wird in dem Generator nachgeschalteten Heißzyklonen abgeschieden und in den Generator zurückgeführt. Diese Ascheteilchen werden wegen ihrer geringen Größe sehr schnell wiederum ausgetragen, und da ihr Kohlenstoffgehalt, besonders bei der Vergasung von Steinkohlen, überwiegend als reaktionsträger Graphit vorliegt, läßt sich auch bei mehrfacher Rezirkulation in den Vergaser keine befriedigende Herabsetzung des Kohlenstoffgehalts der Ascheteilchen erreichen.
2. Die aus dem Produktgasstrom abgeschiedenen Ascheteilchen werden zusammen mit einem anderen Brennstoff, z.B. Kohlenstaub, in herkömmlichen Dampferzeugern verbrannt. Der so erzeugte Dampf dient meistens dazu, das bei der Kohlevergasung gebildete Kohlenmonoxid in einer besonderen Anlage zu konventieren oder die Turbinen für die Produktgaskompressoren zu betreiben.

3. Schließlich ist es bekannt, den abgeschiedenen kohlenstoffhaltigen Flugstaub in einer Schmelzkammer mit Sauerstoff unter Dampfzusatz zu verbrennen und das heiße Verbrennungsgas dem Generator als Vergasungsmittel zuzusetzen. Das Arbeiten oberhalb des Ascheschmelzpunktes, d.h. je nach Zusammensetzung der Asche im Temperaturbereich von 1400 bis 1800 °C, stellt hohe Anforderungen an den Werkstoff der Schmelzkammer. Außerdem müssen Vorkehrungen getroffen werden, um zu vermeiden, daß feine Schlacketröpfchen vom Verbrennungsgas aus der Schmelzkammer ausgetragen werden und in der anschließenden Rohrleitung zu Anbackungen führen. Bei den in der Schmelzkammer herrschenden sehr hohen Temperaturen verdampft ein Teil der Asche und kondensiert wieder in den relativ kälteren Teilen der Anlage in Form eines Aerosols. Die Aerosolteilchen können sehr schwer aus dem Produktgas entfernt werden und verursachen betriebliche Schwierigkeiten in den nachgeschalteten Anlagen, z.B. in Produktgaskompressoren.

[Die vorliegende Erfindung bezweckt eine Verbesserung der Kohlenstoffausnutzung bei der Kohlevergasung in der Wirbelschicht durch Verwertung des Kohlenstoffgehaltes der Asche. Insbesondere soll der Vergasungswirkungsgrad, d.h. das Verhältnis der gebundenen Wärme im Gas zu der gebundenen Wärme in der verbrauchten Kohle durch die Ausnutzung des Kohlenstoffgehaltes der Asche gesteigert werden. Außerdem können auch die aus dem Produktgas entfernten Verunreinigungen umweltneutral beseitigt werden.]

Erfindungsgemäß wird diese Aufgabe bei dem eingangs genannten Verfahren dadurch gelöst, daß man die aus dem Produktgas abgeschiedene und die aus dem Wirbelschichtgenerator unmittelbar ausgetragene kohlenstoffhaltige Asche in einer besonderen, im wesentlichen aus ausgebrannter Asche bestehenden Wirbelschicht bei Temperaturen unterhalb des Ascheschmelzpunktes verbrennt. Zur Verbrennung dient vorzugsweise hochprozentiger Sauerstoff. Durch die so erreichte erhöhte Sauerstoffkonzentration und die vergleichsweise höhere Temperatur als in der Vergasungswirbelschicht gelingt es, den Kohlenstoffgehalt der Asche, der etwa bei 20 bis 50 Gew.-% liegt, auf unter 10 Gew.-%, vorzugsweise unter 5 Gew.-%, zu verringern. Da der im Generator nicht vergaste Kohlenstoff häufig über 10 % des in der eingesetzten Kohle enthaltenen Kohlenstoffes beträgt, ergibt sich bei der erfindungsgemäßen Verbrennung eine wesentliche Verbesserung des Vergasungswirkungsgrades. Der in der Asche enthaltene Kohlenstoff wird zu Kohlendioxid verbrannt, das neben dem Sauerstoff und Wasserdampf als Vergasungsmittel dem Wirbelschichtgenerator zugeführt wird. Zweckmäßigerweise hält man die Temperatur der Aschewirbelschicht in dem Bereich zwischen der Vergasungstemperatur des Generators und der Schmelz- bzw. Sintertemperatur der Asche. Die ausgebrannte Asche wird aus der Aschewirbelschicht abgezogen und nach Ausnutzung ihrer Wärme aus dem Prozess abgestoßen. Die Leerrohrgeschwindigkeit in der Aschewirbelschicht beträgt etwa bis zu 50 % der maximalen Leerrohrgeschwindigkeit in dem Vergasungsreaktor. Die Leerrohrgeschwindigkeit des rohen Produktgases in dem Vergasungs-

reaktor liegt erheblich über dem Punkt der beginnenden Aufwirbelung und reicht im allgemeinen bis zu etwa 6 m/s in Abhängigkeit von dem Betriebsdruck.

Nach der bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens spritzt man Wasser, vorzugsweise verunreinigtes Kondenswasser aus der Produktgaskühlung und Naßentstaubung in die Aschewirbelschicht ein und führt das erzeugte wasserdampfhaltige Verbrennungsgas als Vergasungsmittel und Wärmeträger dem Wirbelschichtgenerator zu. In der Aschewirbelschicht verdampft das eingespritzte Wasser, und die in ihm enthaltenen Verunreinigungen aus der weiteren Verarbeitung des Produktgases, wie z.B. Schwefelverbindungen, Cyanide, feinste Flugasche usw., werden bei den hohen Temperaturen mit dem Sauerstoff verbrannt. Der in der Flugasche enthaltene Schwefel und die im Abwasser enthaltenen Schwefelverbindungen liefern Schwefeldioxid, das mit dem Verbrennungsgas in die Vergasungszone gelangt und dort zu Schwefelwasserstoff reduziert wird, der wiederum mit bekannten Methoden umweltfreundlich beseitigt werden kann. Durch den Einsatz verunreinigter Abwässer in der Aschewirbelschicht wird somit die Reinigung dieser Wässer zum Zwecke der Wiederverwendung oder Abstoßung vermieden. Durch die Wasserzugabe zu der Aschewirbelschicht wird die Temperatur der Wirbelschicht gedämpft und die Aschetemperatur unter der Sintertemperatur gehalten. Bei dieser Ausführungsform enthält das Verbrennungsgas Wasserdampf, der im Gegensatz zu dem durch die Produktgaswärme in



einem Abhitzekessel erzeugten Wasserdampf sehr hoch überhitzt ist und infolgedessen der Vergasung einen erheblichen Teil der benötigten Wärme zuführt, so daß die Sauerstoffzufuhr zum Generator und damit die nur der Wärmeerzeugung dienende Kohleverbrennung verringert werden kann. Demgegenüber ist die Temperatur des Dampfes aus dem mit dem  $H_2S$ -haltigen Produktgas beheizten Abhitzekessel auf 300 bis 400 °C beschränkt, da eine höhere Dampfüberhitzung durch die Werkstoffeigenschaften des Überhitzers begrenzt ist. Das erfindungsgemäße Verfahren mit Wasserzugabe zur Aschewirbelschicht erlaubt es, den schwer vergasbaren Kohlenstoffgehalt der Asche in Dampf und Kohlendioxid von höherer Temperatur als der Vergasungstemperatur umzuwandeln und so durch Zufuhr dieser Vergasungsmittel zum Vergasungsreaktor die zur Temperaturhaltung der Vergasung erforderliche Verbrennung der Kohle mengenmäßig zu verringern.

Nach einer weiteren Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens leitet man Wasserdampf in die Aschewirbelschicht ein und führt ihn nach direkter Überhitzung dem Vergasungsgenerator zu. Dieser Wasserdampf kann beispielsweise im Abhitzekessel durch die fühlbare Wärme des Produktgases erzeugt werden, so daß in der Aschewirbelschicht vom Dampf nur die Überhitzungswärme aufgenommen wird. Auf diese Weise kann eine größere Menge des stark überhitzten Dampfes bereitgestellt werden als wenn der hochüberhitzte Dampf in der Aschewirbelschicht direkt aus Wasser erzeugt wird.

Nach einer weiteren Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens leitet man Kohlensäure in die Aschewirbelschicht ein und führt sie nach direkter Aufheizung dem Vergasungsgenerator zu. Diese Kohlensäure kann beispielsweise aus dem Produktgas gewonnen werden.

Nach der bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens ist weiterhin vorgesehen, daß man die Temperatur der Aschewirbelschicht in dem Bereich von etwa 1000 bis 1300 °C hält. Die Temperatur hängt von der Aschezusammensetzung ab. Bei stark alkalischen oder stark sauren Aschen können je nach Zusammensetzung auch erheblich über 1300 °C bis zu 1500 °C liegende Wirbeltemperaturen angewendet werden, ohne daß es zu Sintererscheinungen kommt. Die Temperatur der Aschewirbelschicht kann durch das Verhältnis des eingesetzten  $H_2O$  und  $O_2$  bzw.  $CO_2$  und  $O_2$  eingestellt werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird nachfolgend an Hand der Zeichnung näher beschrieben, in der das Fließbild einer Anlage zur Durchführung des Verfahrens dargestellt ist.

Dem Vergasungsreaktor 1 wird durch Leitung 2<sup>b</sup> Kohle im Korngrößenbereich von 0 bis 8 mm zugeführt. In den Unterteil des Reaktors wird durch über den Umfang verteilte Düsen Sauerstoff und Dampf eingeführt. Die Zuführung zu den Düsen erfolgt durch die Sauerstoffleitung 2<sup>a</sup> und die Dampfleitung 3. Außerdem wird dem Generator durch Leitung 13 ein Kohlendioxid/

Wasserdampf-Gemisch zugeführt, das als Wärmeträger und Vergasungsmedium dient und dessen Herstellung weiter unten beschrieben ist. In dem Unterteil des Generators 1 bildet sich eine Kohlewirbelschicht  $1^a$  aus, in der ein wesentlicher Teil der durch Leitung  $2^b$  zugeführten Kohle vergast wird. Die größeren Teilchen der dabei gebildeten kohlenstoffhaltigen Asche fallen durch die Konusspitze in das Austragsorgan (nicht dargestellt) und werden durch Leitung 12 abgezogen. Ein erheblicher Teil der teilvergasten Kohle wird durch das Wirbelmedium aus der Wirbelschicht  $1^a$  emporgetragen. Zur weiteren Vergasung des in diesen Teilchen noch enthaltenen Kohlenstoffs wird durch über den Generatorumfang verteilte Düsen (nicht dargestellt) mittels Leitung 2 Sauerstoff zugeführt. Die Kohlenstoffvergasung setzt sich daher im oberen Teil des Generators fort.

Das den Generator 1 durch Leitung 4 verlassende Gas enthält erhebliche Mengen kohlenstoffhaltige Flugasche, deren größter Anteil in dem Heißzyklon 5 aus dem Gas abgeschieden wird. Das mit feineren Ascheteilchen beladene Generatorgas gelangt weiter durch Leitung 7 in den Abhitzekeßel 8, in dem eine Abkühlung des Gases auf etwa 150 bis 300 °C und eine weitere Abscheidung von Ascheteilchen erfolgt. Das Gas durchströmt dann einen weiteren, bei 150 bis 300 °C arbeitenden Zyklon 9, in dem der größte Teil der übrigen, im Gas noch enthaltenen Asche abgeschieden wird. Die in dem Heißzyklon 5, Abhitzekeßel 8 und dem Zyklon 9 gesammelte Asche wird durch die Leitungen  $6$ ,  $8^a$  und  $9^a$  abgeführt, vereinigt und gelangt durch Leitung 10

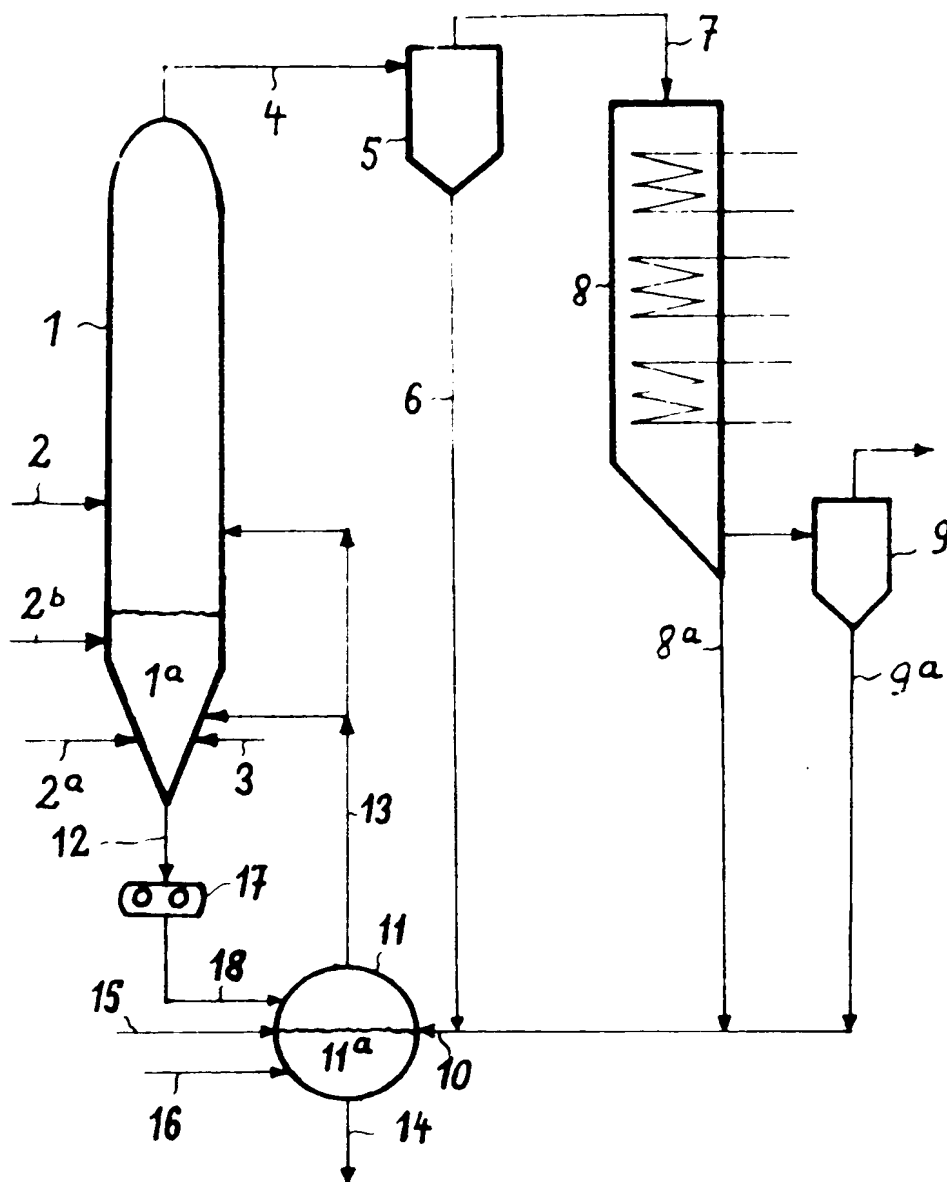
in die Wirbelschichtbrennkammer 11.

In der Brennkammer 11 wird die durch Leitung 10 herangeführte kohlenstoffhaltige Asche und die aus dem Generator 1 direkt ausgetragene, in der Mühle 17 zerkleinerte, und durch Leitung 18 herangeführte kohlenstoffhaltige Asche in einer Wirbelschicht 11<sup>a</sup> mit durch Leitung 16 zugeführten Sauerstoff verbrannt. Neben dem Sauerstoff wird der Wirbelschicht 11<sup>a</sup> durch Leitung 15 verunreinigtes Abwasser zugeführt, das aus der nicht dargestellten Naßreinigung des Produktgases stammt. In der Wirbelschicht 11<sup>a</sup> wird der Kohlenstoffgehalt der Asche weitgehend zu Kohlendioxid verbrannt und das eingespeiste Wasser unter Verbrennung bzw. Zersetzung der enthaltenen Verunreinigungen verdampft. Es entsteht ein im wesentlichen aus Kohlendioxid und Wasserdampf bestehendes Gasgemisch, das gegebenenfalls nach einer nicht dargestellten Abtrennung mitgenommener Ascheteilchen durch Leitung 13 als zusätzliches Vergasungsmedium in den Vergasungsgenerator 1 eingeführt wird. Die in der Wirbelschicht 11<sup>a</sup> ausgebrannte Asche wird durch Leitung 14 abgeführt.

- 13 -  
2729764

Nummer:  
Int. Cl. 2:  
Anmeldetag:  
Offenlegungstag:

27 29 764  
C 10 J 3/54  
1. Juli 1977  
4. Januar 1979



809881/0570

. 12 -  
Leerseite